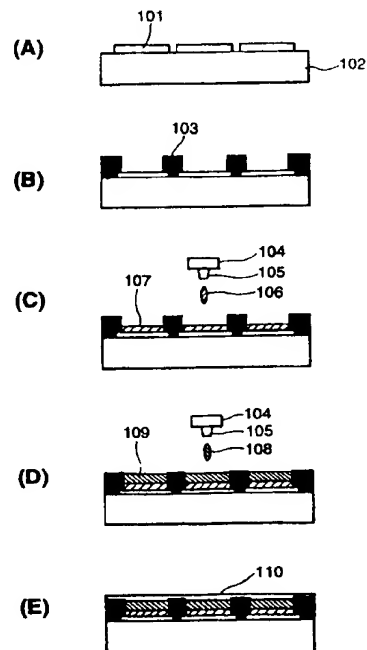


(51) 国際特許分類6 <b>H05B 33/10, 33/22, C08L 101/00, C08K 5/05</b>	<b>A1</b>	(11) 国際公開番号 <b>WO99/12395</b>  (43) 国際公開日 1999年3月11日(11.03.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP98/03935  (22) 国際出願日 1998年9月2日(02.09.98)  (30) 優先権データ 特願平9/237103 1997年9月2日(02.09.97) JP 特願平10/214596 1998年7月29日(29.07.98) JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) セイコーエプソン株式会社 (SEIKO EPSON CORPORATION)[JP/JP] 〒163-0811 東京都新宿区西新宿二丁目4番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者: および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 関 俊一(SEKI, Shunichi)[JP/JP] 木口 浩史(KIGUCHI, Hiroshi)[JP/JP] 〒392-8502 長野県諏訪市大和三丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内 Nagano, (JP) (74) 代理人 弁理士 稲葉良幸, 外(INABA, Yoshiyuki et al.) 〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目5番1号 37森ビル803号室 TMI総合法律事務所 Tokyo, (JP)		(81) 指定国 CN, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  添付公開書類 国際調査報告書 補正書
(54) Title: <b>METHOD OF PRODUCING ORGANIC EL ELEMENT AND ORGANIC EL ELEMENT</b>  (54) 発明の名称 有機EL素子の製造方法及び有機EL素子  (57) Abstract A composition for a hole injection/transportation layer is used for forming by patterning a hole injection/transportation layer of an organic EL element by using an ink-jet recording head, and contains an electrically conducting compound which is a component of the hole injection/transportation layer and a solvent, has a contact angle of from 30° to 170° relative to the material constituting the ink-jet nozzle surface of the ink-jet recording head, has a viscosity of from 1 cp to 20 cp and a surface tension of from 20 dyne to 70 dyne. Owing to such physical properties, the material and element can be designed in an optimum manner. The composition for the hole injection/transportation layer makes it possible to pattern-form a high-precision film easily, within short periods of time and at a low cost.		



(57)要約

本発明の正孔注入輸送層用組成物は、有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、正孔注入輸送層の成分である導電性化合物と溶媒とを含み、インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が $30^{\circ}$ から $170^{\circ}$ の範囲であり、かつ、粘度が1 c pから20 c pの範囲であって、表面張力が20 dyneから70 dyneの範囲である。このような物性的特性により、材料や素子設計の最適化を行うことができ、かつ簡便、短時間、低コストで精度の高いパターンニング成膜を行うことができる正孔注入輸送層用組成物を提供することができる。

PCTに基づいて公開される国際出願のパフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリランカ	SI	スロベニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロバキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラレオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グアドループ	LU	ルクセンブルグ	ST	セント・ヘレナ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	ジョージア	LV	ラトビア	TC	タークス・カイコス諸島
BB	バハマ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TD	チュニジア
BE	ベルギー	GN	ギニア	MD	モルドバ	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TR	トルコ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	MK	マケドニア共和国	TT	トリニダード・トバゴ
BS	バハマ	HU	ハンガリー	ML	マリ	UA	ウクライナ
CA	カナダ	IE	アイルランド	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
CF	中央アフリカ	IL	イスラエル	MR	モーリタニア	US	米国
CG	コンゴ	IN	インド	NW	ネパール	UZ	ウズベキスタン
CH	スイス	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ベトナム
CI	コート・ジボワール	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CM	コンゴ民主共和国	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CO	コロンビア	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CR	コスタリカ	KO	韓国	PT	ポルトガル		
CX	クリスマス島	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
CU	キューバ	KR	韓国	RU	ロシア		
CV	カボベルデ	KZ	カザフスタン	SD	スーダン		
CY	キプロス	LT	リトアニア	SE	スウェーデン		
CZ	チェコ	LU	ルクセンブルグ	SG	シンガポール		
DE	ドイツ						

## 有機EL素子の製造方法及び有機EL素子

本発明は、ディスプレイ、表示光源などに用いられる電氣的発光素子である有機EL (electroluminescence) 素子の製造方法に関するものである。特に、インクジェットパターニングに好適な正孔注入輸送層用組成物に係わる。

## 背景技術

蛍光性有機分子を含む固体薄膜を電極で挟み電荷を印加すると陽極から正孔（ホール）が、陰極から電子が注入され、これらのキャリアは印加電場により薄膜中を移動し再結合する。この再結合の際放出されたエネルギーは蛍光分子の一重項励起状態（分子励起子）の形成に消費され、この一重項励起子の基底状態への緩和にともなって放出される蛍光を利用した素子が有機 EL 素子である。

ところで、発光層のみからなる単層型構造素子では発光効率が低く、耐久性に問題があるため、陽極と発光層間に密着性の良い正孔注入輸送層を設けた二層構造型素子が提案されている。積層構造を採用することで、キャリアの注入／輸送バランスおよびキャリアの再結合部位の制御により、EL発光素子の発光効率、耐久性を向上させることができる。また、積層構造によれば、発光、注入／輸送といった機能を別々の材料に分担させることができるため、材料、素子の最適設計が可能になるという利点を持つ。

これまで二層積層型有機EL素子の正孔注入輸送層化合物としては、ポルフィリン化合物（米国特許第4356429号，同4720432号）、アニリンやピリジンおよびそれらの誘導体低分子（特開平3-34382号）、あるいはカーボン層用いた正孔注入輸送

層（特開平 8-31573号）などがこれまでに提案されている。これらの低分子系材料を用いた正孔注入輸送層形成には、真空蒸着やスパッタによる成膜法が一般的である。高分子材料としてはポリアニリン（Nature, 357, 477（1992））などが知られ、スピ

5   ピンコートなどの湿式法で成膜される。

しかしながら、真空蒸着やスパッタによる成膜法はバッチ処理であり長時間を有するため量産効率が悪い。また低分子材料の場合には成膜後結晶化しやすく、素子の信頼性が低下するといった課題を有する。一方、高分子材料の場合は分子設計上の自由度が高く、湿

10   式のため材料の最適化がしやすいという利点を有するが、スピコートなどの成膜法は材料の殆どを浪費するという大きな問題がある。

更に、フルカラーディスプレイなど材料の微細パターンニングが必要とされる場合、蒸着法においては高精度のパターンニングは困難であり、またフォトリソグラフィによるパターンニング工程に対し

15   ては材料に耐性がないという根本的な問題がある。高分子材料においても同様な課題を有する。正孔注入輸送層あるいはバッファ層として用いられる材料は導電性を有するものであるから完全なパターンニングが実現できなければ同一基板上に設けられた隣の画素間での漏電を引き起こす原因となる。

20

#### 発明の開示

そこで、本発明は、材料や素子設計の最適化を行うことができ、かつ簡便、短時間、低コストで精度の高いパターンニング成膜を行うことができる正孔注入輸送層用組成物を提供することを課題とする。

25   また、正孔注入輸送層用組成物の製造方法を提供することを課題とする。また、この組成物を用いた有機EL素子の製造法を提供することを課題とする。さらに、この製造方法で製造した、発光特性に優れた有機EL素子を提供することを課題とする。

本発明の正孔注入輸送層用組成物は、有機EL素子の正孔注入輸

- 送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、正孔注入輸送層を形成する導電性化合物を分散或いは溶解させる極性溶媒、及び、インクジェットパターンニングを容易にするための湿潤剤とを含み、以下の物性的特性（接触角、粘度、表面張力）を有する。
- 5

（１）接触角

- インクジェット式記録ヘッドのノズル面を構成する材料と正孔注入輸送層用組成物との接触角は  $30\text{ deg} \sim 170\text{ deg}$  の範囲に設定することが好ましい。特に、 $35\text{ deg} \sim 65\text{ deg}$  の範囲に設定することが好ましい。
- 10

- 正孔注入輸送層用組成物がこの範囲の接触角をもつことによって吐出時の飛行曲がりやを抑制することができ、精密な吐出制御が可能になる。接触角が  $30\text{ deg}$  未満の場合、正孔注入輸送層用組成物のノズル面における濡れ性が増大し、正孔注入輸送層用組成物を吐出する際に、正孔注入輸送層用組成物がノズル孔の周囲に非対称に付着することがある。この場合、ノズル孔に付着した正孔注入輸送層用組成物と吐出しようとする正孔注入輸送層用組成物との相互間に引力が働くため、正孔注入輸送層用組成物は不均一な力により吐出されることになり、飛行曲がりやが生じ、目標位置に着弾できない。
- 15
- また、飛行曲がりや頻度が多くなる。一方、接触角が  $170\text{ deg}$  を超えると、正孔注入輸送層用組成物とノズル孔との相互作用が極小となり、ノズル先端でのメニスカスの形状が安定しないため正孔注入輸送層用組成物の吐出量及び吐出タイミングの制御が困難になる。
- 20

- 尚、飛行曲がりとは、正孔注入輸送層用組成物をノズル孔から吐出させたとき、正孔注入輸送層用組成物の着弾位置が目標位置に対して  $30\text{ }\mu\text{m}$  以上のずれを生じることという。また、飛行曲がり頻度とは、インクジェット式記録ヘッドの圧電体薄膜素子の振動周波数、例えば、 $14.4\text{ kHz}$  で連続吐出したときの飛行曲がりやが生じるまでの時間をいう。
- 25

## (2) 粘度

正孔注入輸送層用組成物の粘度は 1 cp ~ 20 cp の範囲が好ましい。特に、2 cp ~ 4 cp の範囲に設定することが好ましい。

- 5 正孔注入輸送層用組成物の粘度が 1 cp 未満の場合、ノズル孔における正孔注入輸送層用組成物のメニスカスが安定せず、吐出制御が困難となる。一方、粘度が 20 cp を超えると、ノズル孔から正孔注入輸送層用組成物を円筒に吐出させることができず、ノズル孔を大きくする等のインクジェット式記録ヘッドの仕様を変更しない限り、インク吐出が困難となる。さらに、粘度が大きい場合、正孔
- 10 注入輸送層用組成物中の固形成分が析出しやすくなり、ノズル孔の目詰まり頻度が高くなる。

## (3) 表面張力

- 正孔注入輸送層用組成物の表面張力は 20 dyne ~ 70 dyne の範囲に設定することが好ましい。特に、25 dyne ~ 40 dyne の範囲
- 15 内に設定することが好ましい。

- この範囲内の表面張力に設定することにより、上述した接触角と同様、飛行曲がりを抑制し、飛行曲がり頻度を低減することができる。表面張力が 70 dyne 以上になると、ノズル先端でメニスカス形状が安定しないため、正孔注入輸送層用組成物の吐出量、吐出ク
- 20 イミングの制御が困難となる。一方、表面張力が 20 dyne 未満であると、ノズル面の構成材料に対する正孔注入輸送層用組成物の濡れ性が増大するため、上記接触角の場合と同様、飛行曲がりが生じ、飛行曲がり頻度が高くなる。

- この飛行曲がりは、主にノズル孔の濡れ性が不均一である場合や、
- 25 正孔注入輸送層用組成物の固形成分の付着による目詰まり等によって発生するが、インクジェット式記録ヘッドをクリーニングする(以下、「フッラッシング」という。)ことによって解消することができる。このフッラッシングは通常、インクジェット式記録ヘッド機構に細工をして目詰まりや飛行曲がりを防止するもので、正孔注入輸

送層用組成物の吐出が一定時間（以下、「フラッシング時間」という。）行われなくなると、所定量の正孔注入輸送層用組成物を強制的に吐出させる仕組みになっている。このフラッシング時間は、正孔注入輸送層用組成物を吐出していないノズルが乾燥し、飛行曲が  
5 りを起こすまでの時間を意味し、正孔注入輸送層用組成物の特性を示す指標となる。フラッシング時間が長い程、インクジェット印刷技法に適しているといえるため、長時間安定して正孔注入輸送層用組成物を吐出することができる。

従って、正孔注入輸送層用組成物が上記の物性値を有することで、  
10 フラッシング時間を長くすることができ、大気と正孔注入輸送層用組成物の界面をよりフレッシュな状態に保持することができる。また、吐出される正孔注入輸送層用組成物のドロットの濃度を均一にすることができるので正孔注入輸送層用組成物のムラの発生等を防止することができる。さらに、飛行直進性に優れるため、インクジェ  
15 ット式記録ヘッドの制御が容易となり、製造装置を簡易な構成とすることができる。

尚、極性溶媒として、水と低級アルコール（例えば、メタノール又はエタノール）の混合溶媒が好ましい。また、水とセロソルブ系溶媒（例えば、エトキシエタノール）の混合溶媒としてもよい。また、  
20 湿潤剤はグリセリンが好ましい。さらに、本発明の正孔注入輸送層用組成物の製造方法は、超音波処理工程と、濾過工程を経て調整するものである。

本発明の有機EL素子の製造方法は、画素領域毎に区画された仕切部材内に形成される、正孔注入輸送層と発光層の積層構造を有する有機EL素子の製造方法であって、画素領域に対応した開口部を  
25 備える仕切部材を基板上に形成する工程と、インクジェット式記録ヘッドを用いて前記開口部内に、本発明の正孔注入輸送層用組成物を充填する工程と、開口部内に充填された正孔注入輸送層用組成物を乾燥処理して正孔注入輸送層を形成する工程と、を備える。この

方法により、正孔注入輸送層の膜厚、ドット数等の条件を任意に調整することができるため、有機EL発光素子のサイズやパターンも任意に設定することができる。

本発明の有機EL素子は、上記の方法で製造されるものであり、  
5 正孔注入輸送層の膜厚が、 $0.1 \mu\text{m}$ 以下とする。また、正孔注入輸送層の膜抵抗は、 $0.5 \times 10^{-4} \Omega/\text{m}^2$ 乃至 $5 \times 10^{-4} \Omega/\text{m}^2$ の範囲とする。正孔注入輸送層の膜厚、膜抵抗を上記の範囲に設定することで、有機EL素子の発光特性を向上させることができる。

## 10 図面の簡単な説明

第1図は有機EL素子の製造工程断面図である。

発明を実施するための最良の形態

発明の実施の形態1.

15 以下、本実施の形態に係わる正孔注入輸送層用組成物、有機EL素子の製造方法及び有機EL素子について説明する。

正孔注入輸送層用組成物は、主として正孔注入輸送層を形成する導電性化合物、分散溶媒、湿潤剤を含み、インクジェット方式によるパターン成膜に用いられる。この正孔注入輸送層を形成する導電性化合物は陽極よりイオン化ポテンシャルが低い化合物が望ましい。  
20 例えば、陽電極としてITOを用いた場合、低分子系材料としては、銅フタロシアニン等のポルフィリン化合物が挙げられる。

尚、その他の添加剤、被膜安定化材料を添加してもよく、例えば、粘度調製剤、老化防止剤、pH調製剤、防腐剤、樹脂エマルジョン、  
25 レバリング剤等を用いることができる。

(実施例)

導電性化合物（正孔注入輸送層成分）として、銅フタロシアニンを用いた場合の、正孔注入輸送層用組成物の物性的特性について検討した。試料は表1乃至表10に示す組成物1乃至組成物10を調



整した。

【表 1】

組成物 1

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フタロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	25
極性溶媒	水	70
湿潤剤	グリセリン	5

【表 2】

5 組成物 2

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フタロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	25
極性溶媒	水	65
	メタノール	5
湿潤剤	グリセリン	5

【表 3】

組成物 3

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フタロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	25
極性溶媒	水	65
	エトキシエタノール	5
湿潤剤	グリセリン	5

【表 4】

組成物 4

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フタロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	25
極性溶媒	メタノール	70
湿潤剤	グリセリン	5

【表 5】

組成物 5

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フタロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	2.5
極性溶媒	N, N-メチルホルムアミド	7.0
湿潤剤	グリセリン	5

【表 6】

組成物 6

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フタロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	2.5
極性溶媒	水	7.5
湿潤剤	—	0

5

【表 7】

組成物 7

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フクロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	2.5
極性溶媒	水	7.0
	メタノール	5
湿潤剤	—	0

【表 8】

組成物 8

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送 層成分	銅フクロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	2.5
極性溶媒	水	7.0
	エトキシエタノール	5
湿潤剤	—	0

【表 9】

組成物 9

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送層成分	銅フクロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	25
極性溶媒	水	65
	ブトキシエタノール	5
湿潤剤	グリセリン	5

【表 10】

組成物 10

	組成	含有量 (wt%)
正孔注入輸送層成分	銅フクロシアニン (10 wt%) (スチレンアクリル樹脂分散液)	25
極性溶媒	水	65
	イソプロピルアルコール	5
湿潤剤	グリセリン	5

## 5 (吐出評価)

表 1～表 8 に示す組成物 1～組成物 8 のインクジェット式記録ヘッドを構成するノズル面構成材料に対する接触角、粘度および表面張力を測定し、それらの吐出性を評価した。吐出評価はインクジェットプリント装置 (エプソン製 MJ-500C) を用いて行った。

10 尚、粘度は 20℃での測定値である。これらの結果を表 11 に示す。

【表 11】

組成物	接触角 [°]	粘度 [cp]	表面張力 [dyne]	吐出性
1	135	3.8	62.8	○
2	91	3.6	40.8	○
3	62	3.1	39.8	◎
4	22	0.8	23.1	×
5	175	0.9	81.0	×
6	118	1.1	71.0	×
7	28	0.8	68.8	×
8	27	0.9	69.2	×

この結果から、接触角は $30^{\circ}$ から $170^{\circ}$ 、特に、 $35^{\circ}$ から $65^{\circ}$ が好ましいことがわかる。また、粘度は $1\text{ c p}$ から $20\text{ c p}$ 、特に、 $2\text{ c p}$ から $4\text{ c p}$ が好ましく、表面張力は $20\text{ dyne}$ から $70\text{ dyne}$ 、特に、 $25\text{ dyne}$ から $40\text{ dyne}$ の範囲が好ましいことがわかる。

また、湿潤剤としてグリセリンが混入されている組成物1乃至組成物3は、湿潤剤が混入されていない組成物6乃至組成物8と比較すると、吐出性に優れていることがわかる。従って、インク組成物中に湿潤剤が含まれていることが好ましい。湿潤剤を混入することで、インク組成物がノズル口で乾燥・凝固することを有効に防止することができる。かかる湿潤剤としては、例えば、グリセリン、シエチレングリコール等の多価アルコール類が挙げられるが、グリセリンが特に好ましい。

(正孔注入輸送層用組成物の製法)

表1乃至表3、及び、表9、表10にそれぞれ示す組成物1乃至組成物3、及び、組成物9、組成物10を製造し、超音波処理前後の正孔注入輸送層形成化合物(銅フタロシアニン)の粒度分布を測定した。更に、超音波処理後、濾過工程を経た上記正孔注入輸送層用組成物を用い、インクジェット方式パターニングにより形成された正孔注入輸送層の成膜性を評価した。

これらの結果を表12に示す。超音波処理の効果は $1\mu\text{m}$ 以下の粒度分布の割合で示した。

尚、スチレンアクリル樹脂分散液での粒径は $1\mu\text{m}$ 以上である。

【表12】

組成物	1 $\mu\text{m}$ の粒径の割合 (%)		成膜性
	超音波処理前	超音波処理後	
1	4.8	46.8	○
2	2.8	31.4	○
3	4.2	43.5	◎
9	2.5	18.5	×
10	3.9	18.2	×

この結果から、前記分散液を4時間超音波処理することで分散性を上げることができることがわかる。また、超音波処理分散液をさらに濾過することによって、より均一な正孔注入輸送層膜を得ることができる。また、導電性化合物の分散極性溶媒としては、水、又は、水とメタノール或いはエトキシエタノールとの混合溶媒である  
5 ことが好ましく（組成物1乃至組成物3）、これらの溶媒を用いた場合、成膜性も良いことがわかる。

（有機EL素子の製造工程）

表1乃至表3に示す組成物1乃至組成物3を用いて、以下に示す  
10 手順でインクジェット方式による正孔注入輸送層のパターニング成膜を行い、有機EL素子を製造した。

陽極形成工程（第1図（A））

本工程はガラス基板102上に陽極101を形成する工程である。ガラス基板102としては、酸やアルカリ等の薬品に侵されにくく、  
15 量産可能であるものが好ましい。ITO透明電極を基板102上に0.1 $\mu$ mの厚さで成膜し、100 $\mu$ mピッチでパターニングする。

仕切部材形成工程（同図（B））

本工程は、ガラス基板102上に仕切部材103を形成する工程である。具体的には、陽極（ITO電極）101間を埋め、インク  
20 垂れ防止壁（バンク）を兼ねた非感光性ポリイミド（仕切部材）をフォトリソグラフィにより形成した。非感光性ポリイミドは幅20 $\mu$ m、厚さ2.0 $\mu$ mとした。

正孔注入輸送層用組成物吐出工程（同図（C））

更に、インクジェットプリント装置（エプソン製MJ-800C）  
25 104のヘッド105から正孔注入輸送層用組成物1乃至3（図中106）を吐出し、正孔注入輸送層107をパターンニング成膜した。パターン成膜後、200℃10分の乾燥処理により正孔注入輸送層を形成した。正孔注入輸送層用組成物吐出時において、バンク越しの塗布は見られず、高精度の正孔注入輸送層パターンが得られ

た。

発光層組成物充填工程（同図（D））

- 次いで、緑色発光層としてPPV前駆体（ポリ（パラフェニレンビニレン））組成物を製造した。インクジェット方式により発光層組成物108を吐出し、発光層109をパターンニング成膜した。発光層109としては赤色発光を示すロータミンBをドーブしたPPVや青色発光を示すクマリンをドーブしたPPVを用いても良い。赤、緑、青の3原色発光を示す発光層を正孔注入輸送層上に更にパターンニングすることにより高精細なフルカラー有機ELディスプレイの製造が可能となる。

陰極形成工程（同図（E））

最後に、発光層109を覆うように陰電極110を蒸着して有機EL素子を形成した。

（正孔注入輸送層の成膜評価）

- 上記有機EL素子の製造工程において、正孔注入輸送層用組成物の吐出回数を変えたときの正孔注入輸送層の膜厚、シート抵抗を測定し、成膜性を評価した。これらの結果を表13に示す。

【表13】

組成物	吐出回数	膜厚 [ $\mu\text{m}$ ]	抵抗 [ $\Omega/\text{m}^2$ ]	成膜性	発光輝度 [ $\text{cd}/\text{m}^2$ ]
1	1	0.05	$5.0 \times 10^9$	○	2000
	3	0.14	$1.7 \times 10^9$	○	1900
	5	0.26	$0.9 \times 10^9$	×	1600
2	1	0.03	$0.7 \times 10^9$	◎	2000
	3	0.1	$0.2 \times 10^9$	×	1500
	5	0.14	$0.1 \times 10^9$	×	1500
3	1	0.02	$0.5 \times 10^9$	◎	2000
	3	0.06	$0.2 \times 10^9$	○	1800
	5	0.1	$0.1 \times 10^9$	×	1400

- この結果から、低分子系材料の場合、正孔注入輸送層の膜厚が0.05  $\mu\text{m}$ 以下であり、膜抵抗値が $0.5 \times 10^9 \Omega/\text{m}^2$ から $5 \times 1$

$0.9 \Omega / \text{m}^2$ である場合、発光特性が良いことがわかる。

(作用)

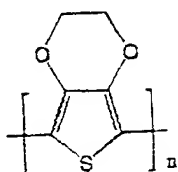
- 5 本実施の形態のインクジェット方式パターンニングによれば、微細パターンニングを簡便に短時間かつ低コストで実現できる。従って、べた成膜法では解決することのできなかった正孔注入輸送層自身による漏電の心配はない。また、吐出量あるいは吐出回数の加減により膜厚の制御が容易にできるため、それによって薄膜設計の最適化が可能となる。

#### 10 発明の実施の形態 2.

本実施の形態は、正孔注入輸送層を形成する導電性化合物を溶液からの成膜が可能な材料（高分子材料）としたもので、ポリアニリン、ポリシラン等の導電性高分子を用いるものである。特に、水を主溶媒として使えること、混合比により特性を調節できることから

#### 15 P E D T（ポリエチレンジオキシチオフエン）

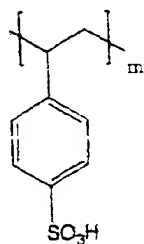
【化 1】



と P S S（ポリスチレンスルホン酸）

20

【化 2】



25 の混合材料が好ましい。

(実施例)

高分子材料（正孔注入輸送層成分）として、PEDT/PSS混合水溶液を用いた場合の正孔注入輸送層用組成物を、表14乃至表18に示す5種類（組成物11乃至組成物15）を調整し、物性的特性（接触角、表面張力及び粘度）を測定した。

【表14】

組成物11

組成物	材料名	含有量 (wt %)
正孔注入輸送層成分	PEDT/PSS混合水分散液 (1.0 wt %)	2.0
極性溶媒	水	8.0
湿潤剤	—	0

10 【表15】

組成物12

組成物	材料名	含有量 (wt %)
正孔注入輸送層成分	PEDT/PSS混合水分散液 (1.0 wt %)	2.0
極性溶媒	N,N-ジメチルホルムアミド	7.5
湿潤剤	グリセリン	5

【表16】

組成物13

組成物	材料名	含有量 (wt %)
正孔注入輸送層成分	PEDT/PSS混合水分散液 (1.0 wt %)	2.0
極性溶媒	水	7.5
湿潤剤	グリセリン	5



【表 1 7】

## 組成物 1 4

組成物	材料名	含有量 (w t %)
正孔注入輸送層成分	P E D T / P S S 混合水分散液 ( 1 . 0 w t % )	2 0
極性溶媒	水	7 0
	メタノール	5
湿潤剤	グリセリン	5

【表 1 8】

## 5 組成物 1 5

組成物	材料名	含有量 (w t %)
正孔注入輸送層成分	P E D T / P S S 混合水分散液 ( 1 . 0 w t % )	2 0
極性溶媒	水	6 5
	エトキシエタノール	1 0
湿潤剤	グリセリン	5

吐出評価は、インクジェットプリント装置（エプソン製 M J - 8 0 0 C ）を用いて行った。また、成膜性の評価は、吐出による塗布後、2 0 0 ° C 、 1 0 ~ 6 0 分の加熱処理後の膜状態を評価した。粘度は 2 0 ° C での測定値である。

【表 1 9】

組成物	接 触 角 [ ° ]	粘 度 [ cps ]	表 面 張 力 [ dyne/cm ]	吐出性	成膜性
1	1 3 0	1 . 2	7 3 . 0	×	—
2	6 3	0 . 9	3 8 . 5	×	—
3	1 2 0	4 . 5	6 8 . 0	○	△
4	8 4	4 . 0	6 2 . 3	◎	○
5	6 4	3 . 5	4 0 . 0	◎	◎

以上の結果から、導電性高分子材料の濃度は、組成物全体に対し

5 5 0 . 1 w t % ~ 1 0 . 0 w t % が好ましく、特に、0 . 1 w t % ~ 5 . 0 w t % が好ましい。導電性高分子の濃度が低すぎると必要な膜厚を得るために吐出回数が多くなってしまい量産効率が悪くなり、一方、導電性高分子の濃度が高すぎても粘度が高くなってしま

10 また、正孔注入輸送層用組成物中には湿潤剤が含まれていることが好ましい。これによりインク組成物がインクジェットノズル口で乾燥・凝固することを有効に防止することができる。かかる湿潤剤としては、例えば、グリセリン、ポリエチレングリコール等の多価アル

10 アルコール類が挙げられるが、グリセリンが好ましい。湿潤剤の添加量としては、組成物全体量に対して 5 w t % ~ 2 0 w t % 程度が好ましい。

15 正孔注入輸送層用組成物に用いる極性溶媒としては、水と低級アルコールの混合溶媒あるいは水とセロソルブ系溶媒の混合溶媒が好ましい。これらの溶媒を用いることにより導電性化合物の溶解性あ

15 るいは分散性を損なうことなく、正孔注入輸送層用組成物のインクジェット用ヘッドのノズル面を構成する材料に対する接触角、粘度および表面張力の調整が可能となる。低級アルコールとしてはメタノール、エタノールがより好ましい。セロソルブ系溶媒としては成

20 膜性という点からもエトキシエタノールがより好ましい。

尚、その他の添加剤、被膜安定化材料を添加してもよく、例えば、粘度調製剤、老化防止剤、pH 調製剤、防腐剤、樹脂エマルジョン、レベリング剤等を用いることができる。

(正孔注入輸送層用組成物の製造方法)

25 表 1 8 に示す正孔注入輸送層用組成物 (組成物 1 5) を用いて、超音波処理、濾過工程の有無による成膜性および発光特性の比較を表 7 に示す。緑色発光層としては P P V (ポリ (パラフェニレンビニレン)) を用いた。

【表 20】

工程		膜質	発光輝度 [cd/m <sup>2</sup> ]	発光開始電圧 [V <sub>th</sub> ]	発光寿命 [hr]
超音波処理工程と 濾過工程	有	◎	2000	3.0	5000
	無	△	1000	5.0	500

この結果から、超音波処理することにより分散性を上げ、さらに、超音波処理分散液を濾過した組成物を用いることによって平坦性の良い均一な正孔注入輸送層を得ることができることがわかる。膜厚は 0.05  $\mu\text{m}$  ~ 0.1  $\mu\text{m}$  が好ましい。正孔注入輸送層の成膜性は素子の発光特性に影響を及ぼすからである。

尚、本実施の形態の有機 EL 素子の製造工程は、実施の形態 1 と同様である。

#### 10 産業上の利用可能性

本発明によれば、正孔注入輸送層用組成物を液体にすることにより材料の最適設計を可能にし、更に液体組成物をインク化することにより、インクジェット方式による正孔注入輸送層の高精度パターンニングを可能にできる。また、正孔注入輸送層材料として導電性化合物、特に、高分子材料を用いることにより高信頼性、高特性の有機 EL 素子を製造することが可能となる。

本発明に係わるインクジェット方式パターンニングによれば、簡便でかつ低コストな正孔注入輸送層形成を提供することができる。

本発明の有機 EL 素子の製造法によれば、膜厚、ドット数等の条件を任意に調整可能であるため発光素子のサイズやパターンも任意に設定することができる。更に、インクジェット方式パターンニングによる赤色、緑色、青色の 3 原色発光層形成とを組み合わせることにより、発光特性の優れた高精細フルカラーディスプレイの開発が可能となる。

## 請求の範囲

1. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
5 導電性化合物と溶媒とを含み、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が $30^{\circ}$ から $170^{\circ}$ の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。
2. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
10 導電性化合物と溶媒とを含み、粘度が $1\text{ c p}$ から $20\text{ c p}$ の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。
3. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
15 導電性化合物と溶媒とを含み、表面張力が $20\text{ d y n e}$ から $70\text{ d y n e}$ の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。
4. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
20 導電性化合物と溶媒とを含み、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が $30^{\circ}$ から $170^{\circ}$ の範囲であり、かつ、粘度が $1\text{ c p}$ から $20\text{ c p}$ の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。
5. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
25 導電性化合物と溶媒とを含み、粘度が $1\text{ c p}$ から $20\text{ c p}$ の範囲であり、かつ、表面張力が $20\text{ d y n e}$ から $70\text{ d y n e}$ の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。
6. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
導電性化合物と溶媒とを含み、表面張力が $20\text{ d y n e}$ から $70\text{ d y n e}$ の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。

ylene の範囲であり、かつ、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が  $30^{\circ}$  から  $170^{\circ}$  の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。

- 5 7. 有機 EL 素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、導電性化合物と溶媒とを含み、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が  $30^{\circ}$  から  $170^{\circ}$  の範囲であり、かつ、粘度が  $1\text{ cP}$  から  $20\text{ cP}$  の範囲であって、表面張力が  $20\text{ dyne}$  から  $70\text{ dyne}$  の範囲である、正孔注入輸送層用組成物。
- 10 8. 前記導電性化合物は高分子材料或いは低分子材料の何れかである、請求の範囲第 1 項乃至請求の範囲第 7 項のうち何れか 1 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 15 9. 前記導電性化合物の濃度は、 $0.01\text{ wt}\%$  乃至  $10\text{ wt}\%$  の範囲である、請求の範囲第 1 項乃至請求の範囲第 8 項のうち何れか 1 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 1 0. 前記導電性化合物が前記溶媒として極性溶媒に溶解又は分散された状態で存在する、請求の範囲第 1 項乃至請求の範囲第 9 項のうち何れか 1 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 20 1 1. 前記極性溶媒は水と低級アルコールの混合溶媒である、請求の範囲第 1 0 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 1 2. 前記低級アルコールは、メタノール又はエタノールである、請求の範囲第 1 1 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 1 3. 前記極性溶媒が水とセロソルフ系溶媒の混合溶媒である、請求の範囲第 1 0 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 25 1 4. 前記セロソルフ系溶媒は、エトキシエタノールである、請求の範囲第 1 3 項に記載の正孔注入輸送層用組成物。
- 1 5. 前記組成物中には湿潤剤が含まれている、請求の範囲第 1 項乃至請求の範囲第 1 4 項のうち何れか 1 項に記載の正孔注入輸送層

用組成物。

16. 前記湿潤剤はグリセリンである、請求項15に記載の正孔注入輸送層用組成物。

17. 請求の範囲第1項乃至請求の範囲第16項のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物を、超音波処理工程と、濾過工程を経て製造する方法。

18. 画素領域毎に区画された仕切部材内に形成される、正孔注入輸送層と発光層の積層構造を有する有機EL素子の製造方法において、

10 前記画素領域に対応した開口部を備える仕切部材を基板上に形成する工程と、

インクジェット式記録ヘッドを用いて前記開口部内に、請求項1乃至請求項17のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物を充填する工程と、

15 前記開口部内に充填された正孔注入輸送層用組成物を乾燥処理して正孔注入輸送層を形成する工程と、

を備える有機EL素子の製造方法。

19. 請求の範囲第18項に記載の製造方法で製造された有機EL素子。

20 20. 請求の範囲第18項に記載の製造方法で製造された、前記正孔注入輸送層の膜厚が $0.1\mu\text{m}$ 以下である、有機EL素子。

21. 請求の範囲第18項に記載の製造方法で製造された、前記正孔注入輸送層の膜抵抗が $0.5 \times 10^{-8} \Omega/\text{m}^2$ 乃至 $5 \times 10^{-9} \Omega/\text{m}^2$ の範囲である、有機EL素子。

## 補正書の請求の範囲

[1999年2月12日(12.02.99)国際事務局受理:出願当初の請求の範囲9は取り下げられた;出願当初の請求の範囲1-7及び10-21は補正された;請求の範囲10-21は請求の範囲9-20に番号が付け替えられた;他の請求の範囲は変更なし。

(4頁)]

1. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、
- 5 導電性化合物と溶媒とを含み、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が $30^{\circ}$ 以上 $170^{\circ}$ 以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が $0.01\text{wt}\%$ 以上 $10\text{wt}\%$ 以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。
- 10 2. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
導電性化合物と溶媒とを含み、粘度が $1\text{cps}$ 以上 $20\text{cps}$ 以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が $0.01\text{wt}\%$ 以上 $10\text{wt}\%$ 以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。
- 15 3. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
導電性化合物と溶媒とを含み、表面張力が $20\text{dyne/cm}$ 以上 $70\text{dyne/cm}$ 以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が $0.01\text{wt}\%$
- 20 以上 $10\text{wt}\%$ 以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。
4. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターンニング形成するために用いられる組成物であって、  
導電性化合物と溶媒とを含み、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出
- 25 ノズル面を構成する材料に対する接触角が $30^{\circ}$ 以上 $170^{\circ}$ 以下の範囲であり、粘度が $1\text{cps}$ 以上 $20\text{cps}$ 以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が $0.01\text{wt}\%$ 以上 $10\text{wt}\%$ 以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。
5. 有機EL素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパタ

ーニング形成するために用いられる組成物であって、

導電性化合物と溶媒とを含み、粘度が1 c p s以上2 0 c p s以下の範囲であり、表面張力が2 0 d y n e / c m以上7 0 d y n e / c m以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が0 . 0 1 w t %以上1 0 w t %以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。

6 . 有機E L素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターニング形成するために用いられる組成物であって、

導電性化合物と溶媒とを含み、表面張力が2 0 d y n e / c m以上7 0 d y n e / c m以下の範囲であり、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が3 0 ° 以上1 7 0 ° 以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が0 . 0 1 w t %以上1 0 w t %以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。

7 . 有機E L素子の正孔注入輸送層をインクジェット式記録ヘッドを用いてパターニング形成するために用いられる組成物であって、

導電性化合物と溶媒とを含み、粘度が1 c p s以上2 0 c p s以下の範囲であり、表面張力が2 0 d y n e / c m以上7 0 d y n e / c m以下の範囲であり、前記インクジェット式記録ヘッドのインク吐出ノズル面を構成する材料に対する接触角が3 0 ° 以上1 7 0 ° 以下の範囲であり、かつ、前記導電性化合物の含有量が0 . 0 1 w t %以上1 0 w t %以下の範囲である正孔注入輸送層用組成物。

8 . 前記導電性化合物は高分子材料或いは低分子材料の何れかである、請求の範囲第1項乃至請求の範囲第7項のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

9 . 前記導電性化合物が極性溶媒としての前記溶媒に溶解又は分散された状態で存在する、請求の範囲第1項乃至請求の範囲第8項のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物。



10. 前記極性溶媒は水と低級アルコールの混合溶媒である、請求の範囲第9項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

- 5 11. 前記低級アルコールは、メタノール又はエタノールである、請求の範囲第10項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

12. 前記極性溶媒が水とセロソルブ系溶媒の混合溶媒である、請求の範囲第9項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

10

13. 前記セロソルブ系溶媒は、エトキシエタノールである、請求の範囲第12項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

- 15 14. 湿潤剤を更に含む、請求の範囲第1項乃至請求の範囲第13項のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

15. 前記湿潤剤はグリセリンである、請求の範囲第14項に記載の正孔注入輸送層用組成物。

- 20 16. 請求の範囲第1項乃至請求の範囲第15項のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物を、超音波処理工程と、濾過工程を経て製造する方法。

17. 画素領域毎に区画された仕切部材内に形成される、正孔注入輸送層と発光層の積層構造を有する有機EL素子の製造方法において、

- 25 前記画素領域に対応した開口部を備える仕切部材を基板上に形成する工程と、  
インクジェット式記録ヘッドを用いて前記開口部内に、請求項1乃至請求項16のうち何れか1項に記載の正孔注入輸送層用組成物を充填する工程と、

前記開口部内に充填された正孔注入輸送層用組成物を乾燥処理して正孔注入輸送層を形成する工程と、

を備える有機EL素子の製造方法。

18. 請求の範囲第17項に記載の製造方法で製造された有機EL素子。

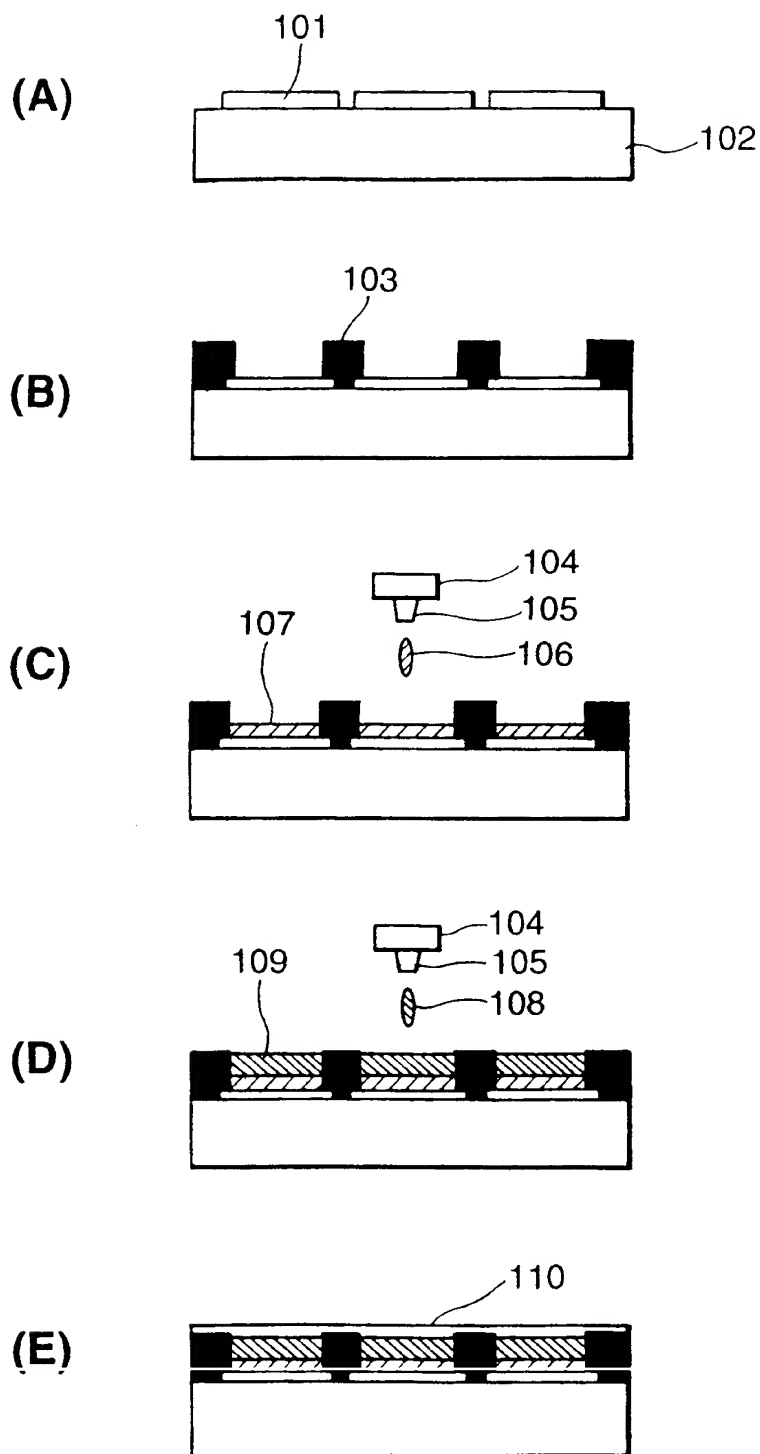
5 19. 請求の範囲第17項に記載の製造方法で製造された、前記正孔注入輸送層の膜厚が $0.1\mu\text{m}$ 以下である、有機EL素子。

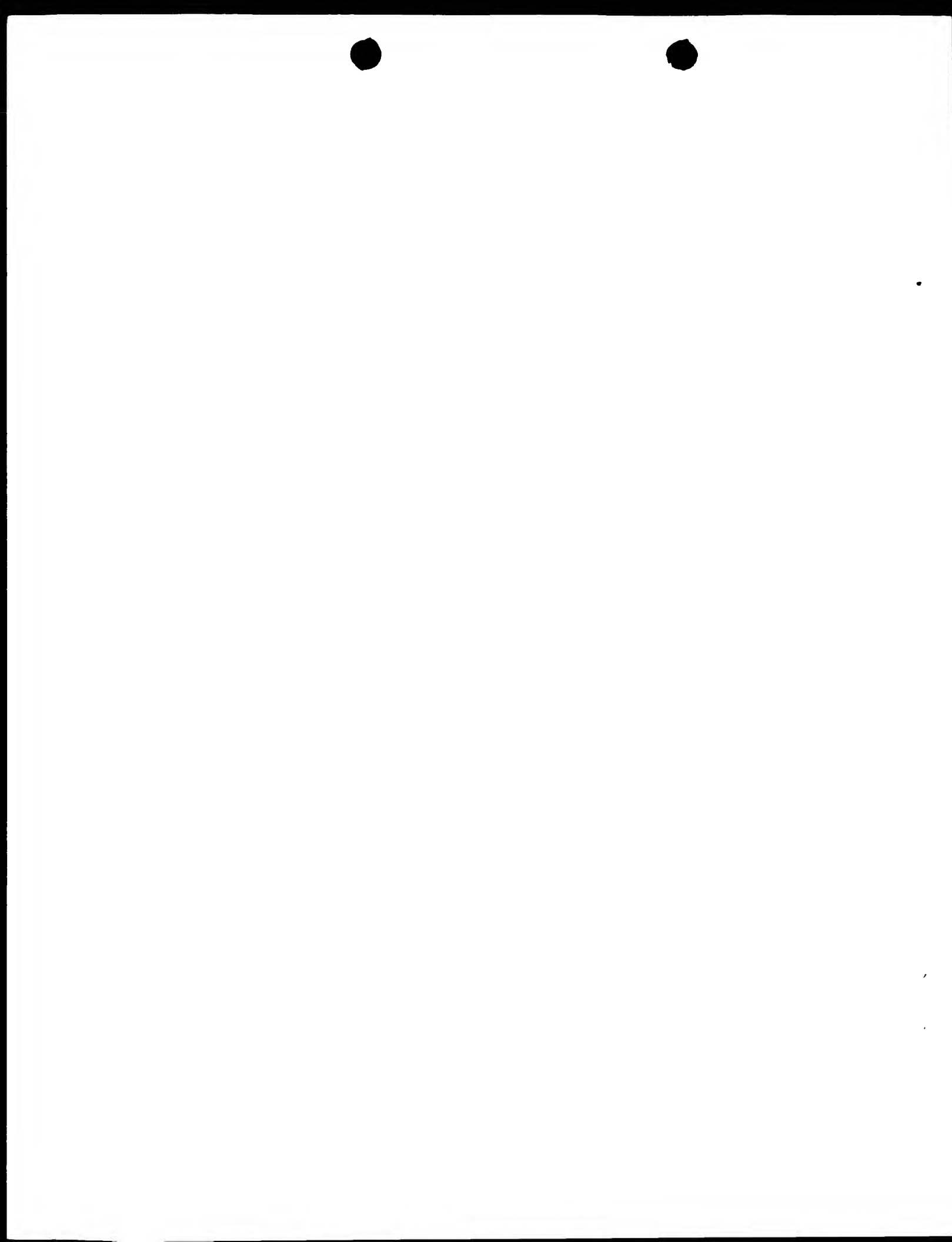
20. 請求の範囲第17項に記載の製造方法で製造された、前記正孔注入輸送層の膜抵抗が $0.5 \times 10^9 \Omega/\text{m}^2$ 乃至 $5 \times 10^9 \Omega/\text{m}^2$ の範囲である、有機E

10 L素子。

1/1

## 第1図





PCT



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)

[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 S 2 7 9 N 3 P の書類記号 0 7 3 W O	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 9 8 / 0 3 9 3 5	国際出願日 (日.月.年) 0 2 . 0 9 . 9 8	優先日 (日.月.年) 0 2 . 0 9 . 9 7
出願人(氏名又は名称) セイコーエプソン株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

#### 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☒ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

H05B 33/10, 33/22, C08L 101/00, C08K 5/05

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

H05B 33/10, 33/22, C08L 101/00, C08K 5/05, C09D 11/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1940-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-1998年

日本国登録実用新案公報 1994-1998年

日本国実用新案登録公報 1996-1998年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 7-235378, A (カシオ計算機株式会社) 5. 9月. 1995 (05. 09. 95) 全文, 第1-10図 (ファミリーなし)	1-21
PY	J P, 10-153967, A (セイコーエプソン株式会社) 9. 6月. 1998 (09. 06. 98) 全文, 第1-6図 (ファミリーなし)	1-21
PY	J P, 10-12377, A (セイコーエプソン株式会社)	1-21

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 12. 98

国際調査報告の発送日

15.12.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

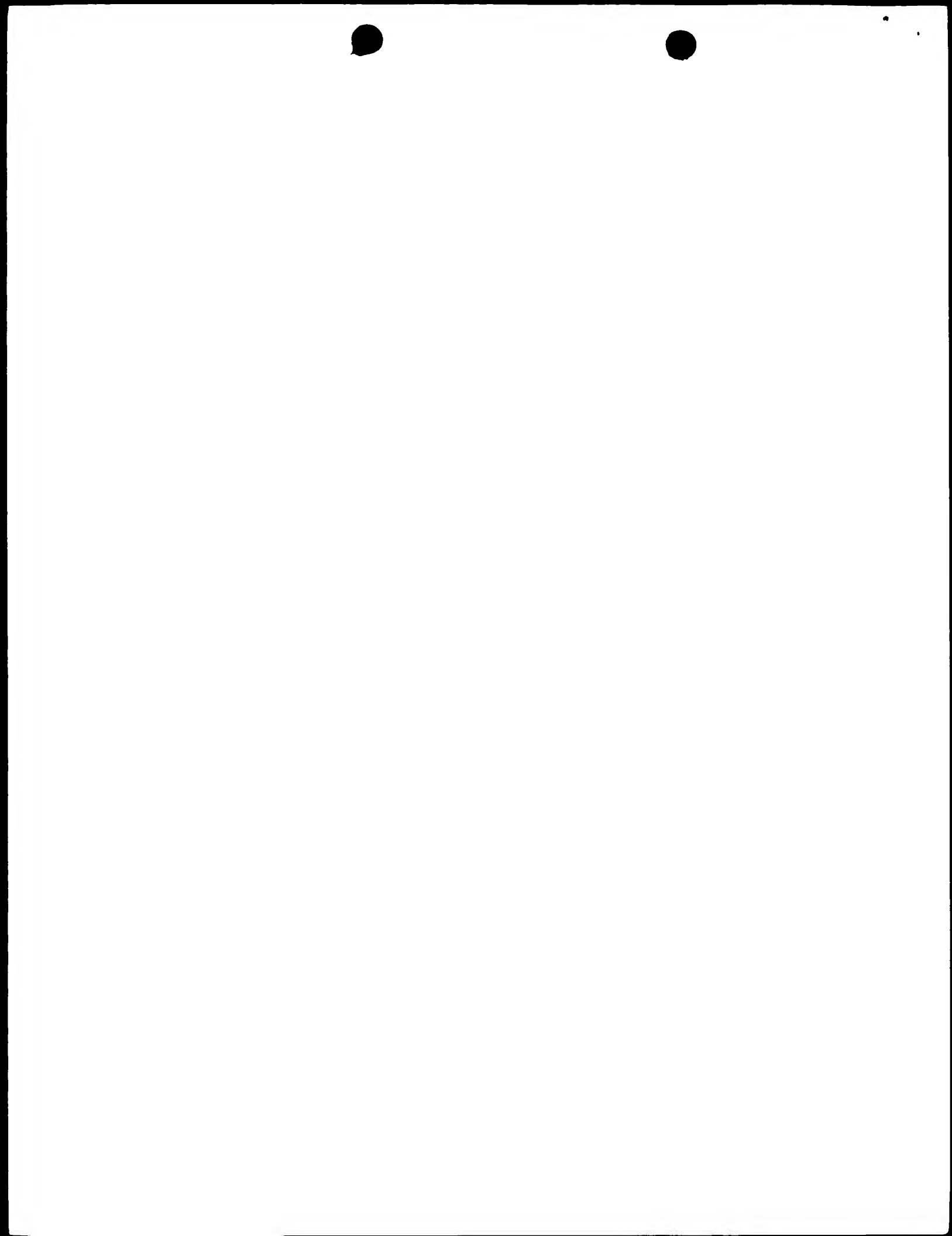
渋谷 善弘

3K

9131

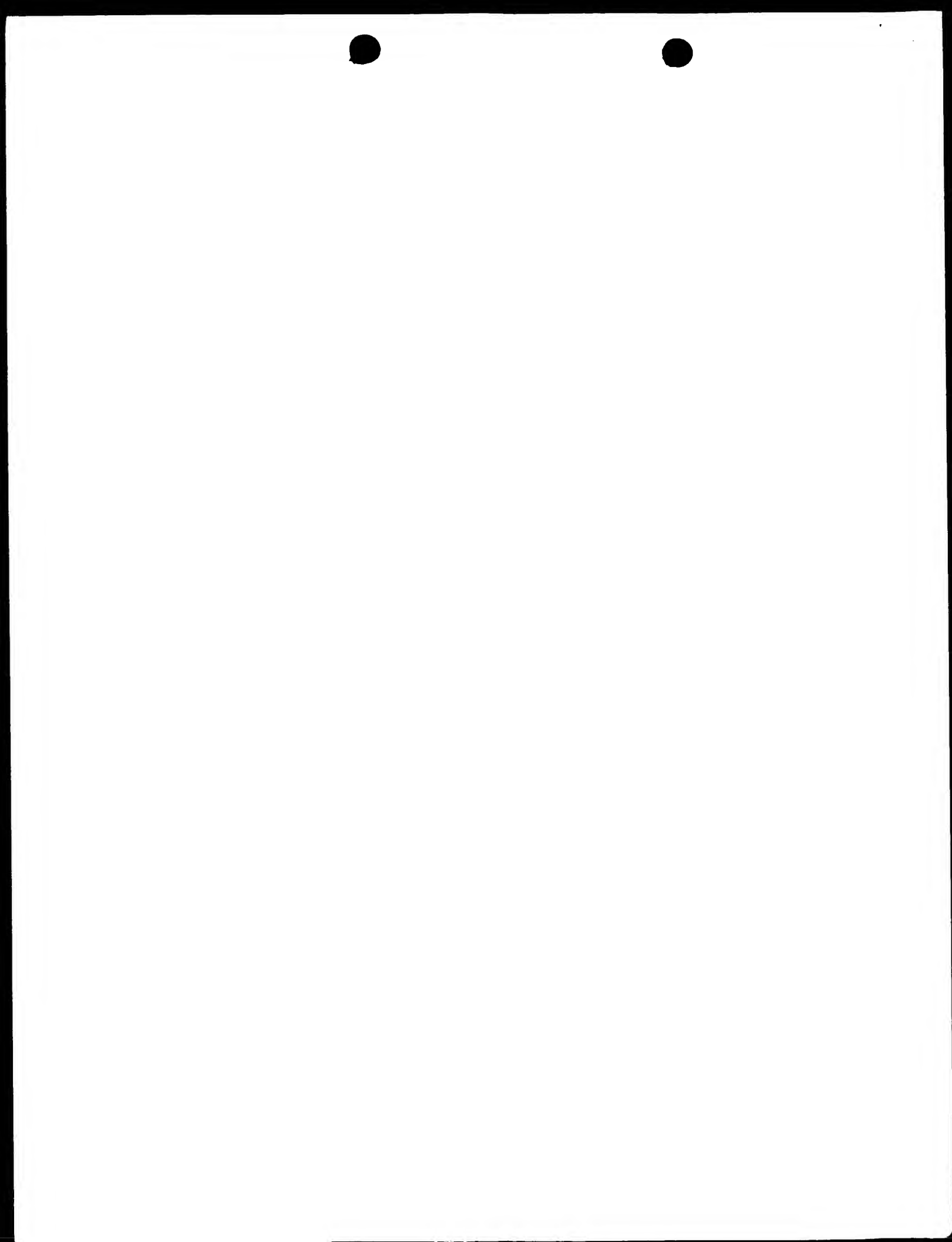
電話番号 03-3581-1101 内線 6381







C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	19. 6月. 1996 (19. 06. 96) 全文, 第1-3図 (ファミリーなし)	
Y	J P, 6-136306, A (キャノン株式会社) 17. 5月. 1994 (17. 05. 96) 全文(ファミリーなし)	1-8
A	J P, 1-204977, A (富士ゴム株式会社) 17. 8月. 1989 (17. 08. 89) 全文 (ファミリーなし)	1-21
A	J P, 4-170478, A (セイコーエプソン株式会社) 18. 6月. 1992 (18. 06. 92) 全文 (ファミリーなし)	1-21



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/03935

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>6</sup> H05B33/10, 33/22, C08L101/00, C08K5/05

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>6</sup> H05B33/10, 33/22, C08L101/00, C08K5/05, C09D11/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1940-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-1998
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-1998	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-1998

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-235378, A (Casio Computer Co., Ltd.), 5 September, 1995 (05. 09. 95), Full text ; Figs. 1 to 10 (Family: none)	1-21
PY	JP, 10-153967, A (Seiko Epson Corp.), 9 June, 1998 (09. 06. 98), Full text ; Figs. 1 to 6 (Family: none)	1-21
PY	JP, 10-12377, A (Seiko Epson Corp.), 19 June, 1996 (19. 06. 96), Full text ; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-21
Y	JP, 6-136306, A (Canon Inc.), 17 May, 1994 (17. 05. 94), Full text (Family: none)	1-8
A	JP, 1-204977, A (Fuji Rubber Co., Ltd.), 17 August, 1989 (17. 08. 89), Full text (Family: none)	1-21

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
2 December, 1998 (02. 12. 98)Date of mailing of the international search report  
15 December, 1998 (15. 12. 98)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/03935

C (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 4-170478, A (Seiko Epson Corp.), 18 June, 1992 (18. 06. 92), Full text (Family: none)	1-21

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

H05B 33/10, 33/22, C08L 101/00, C08K 5/05

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

H05B 33/10, 33/22, C08L 101/00, C08K 5/05, C09D 11/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1940-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-1998年
日本国登録実用新案公報	1994-1998年
日本国実用新案登録公報	1996-1998年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 7-235378, A (カシオ計算機株式会社) 5. 9月. 1995 (05. 09. 95) 全文, 第1-10図 (ファミリーなし)	1-21
PY	J P, 10-153967, A (セイコーエプソン株式会社) 9. 6月. 1998 (09. 06. 98) 全文, 第1-6図 (ファミリーなし)	1-21
PY	J P, 10-12377, A (セイコーエプソン株式会社)	1-21

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 12. 98

国際調査報告の発送日

15.12.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渋谷 善弘

3K 9131

電話番号 03-3581-1101 内線 6381

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	19. 6月. 1996 (19. 06. 96) 全文, 第1-3図 (ファミリーなし)	
Y	J P, 6-136306, A (キャノン株式会社) 17. 5月. 1994 (17. 05. 96) 全文(ファミリーなし)	1-8
A	J P, 1-204977, A (富士ゴム株式会社) 17. 8月. 1989 (17. 08. 89) 全文 (ファミリーなし)	1-21
A	J P, 4-170478, A (セイコーエプソン株式会社) 18. 6月. 1992 (18. 06. 92) 全文 (ファミリーなし)	1-21